

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

A. Ogawa et al.

1/24/02

Q68145

10f1

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日
Date of Application:

2001年 1月31日

出願番号
Application Number:

特願2001-023247

出願人
Applicant(s):

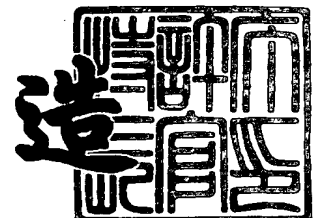
住友化学工業株式会社



2001年10月19日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3091234

【書類名】 特許願

【整理番号】 P152380

【提出日】 平成13年 1月31日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C09J 7/02

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

 【氏名】 小川 敦子

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

 【氏名】 市毛 昭弘

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

 【氏名】 穂積 英威

【特許出願人】

 【識別番号】 000002093

 【氏名又は名称】 住友化学工業株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100093285

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 久保山 隆

 【電話番号】 06-6220-3405

【選任した代理人】

 【識別番号】 100094477

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 神野 直美

 【電話番号】 06-6220-3405

【選任した代理人】

 【識別番号】 100113000

【弁理士】

【氏名又は名称】 中山 亨

【電話番号】 06-6220-3405

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010238

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9903380

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 粘着フィルムまたはシート

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 熱可塑性樹脂からなる基材の少なくとも一方の最外層に粘着剤層を形成してなる粘着フィルムまたはシートにおいて、前記粘着剤層が炭素数 2～20 のうち、2 種類以上の α -オレフィンを必須とする (A) オレフィン系共重合体を含むし、該オレフィン系共重合体が (1) と (2) を満たすことを特徴とする粘着フィルムまたはシート。

(1) 示差走査熱量計 (DSC) を用い、JIS K 7122 に準拠して測定した場合に、結晶の融解に基づく 1 J/g 以上のピーク、及び結晶化に基づく 1 J/g 以上のピークのいずれも有しない

(2) ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー (GPC) で測定される分子量分布 M_w/M_n が 3 以下

【請求項 2】 (A) オレフィン系共重合体が温度 135°C におけるテトラリン溶媒による極限粘度 $[\eta]$ が 0.5 dl/g 以上 1.0 dl/g 以下であることを特徴とする請求項 1 記載の粘着フィルムまたはシート。

【請求項 3】 請求 1 または 2 記載の (A) オレフィン系共重合体と任意のポリプロピレン系樹脂からなる熱可塑性樹脂組成物の式 (1) で定義された X が式 (2) の条件を充足することを特徴とするオレフィン系共重合体を含む粘着剤層を、基材の少なくとも一方の最外層に形成してなる粘着フィルムまたはシート。

$$X = [A(T2M) - A(T2C)] / [| (T2A - T2B) |]$$

…式 (1)

$$X \geq 0.020$$

…式 (2)

$A(T2M)$ 、 $A(T2C)$ は、熱可塑性樹脂組成物の $T2$ 緩和時間を縦軸に、熱可塑性樹脂組成物中に含有されるオレフィン系共重合体の重量分率 P_a を横軸にプロットして得られる曲線の 3 次回帰により求められる重回帰式を 0 から 1 の範囲で定積分して得られる値である。 $A(T2M)$ はパルス NMR 測定から求められる熱可塑性樹脂組成物の $T2$ 緩和時間 $T2M$ を用いて計算された数値であり

、 $A(T2C)$ は下記式 (3) から求められる $T2$ 緩和時間である。 $T2A$ 及び、 $T2B$ はパルス NMR 測定から求められるポリプロピレン系樹脂及びオレフィン系共重合体の $T2$ 緩和時間である。尚、 $T2A$ 、 $T2B$ 、 $T2M$ はパルス NMR の自由誘導減衰 (FID) の $70 \sim 150 \mu S$ の範囲から求められる $T2$ 緩和時間とする。

$$T2C = 1 / [PvA \times (1/T2A) + (1 - PvA) \times (1/T2B)]$$

…式 (3)

この時、 PvA は式 (4) で定義される数値であり、熱可塑性樹脂組成物のパルス NMR の自由誘導減衰 (FID) の $70 \sim 150 \mu S$ の範囲に観測される成分中にポリプロピレン系樹脂成分の占める体積分率である。式 (4) に含まれる V_A 及び、 V_B はポリプロピレン系樹脂及び熱可塑性樹脂組成物のパルス NMR の自由誘導減衰 (FID) の $70 \sim 150 \mu S$ の範囲に観測される成分の体積分率である。

$$PvA = [V_A \times (1 - Pa)] / V_B$$

…式 (4)

【請求項 4】 請求項 3 記載の (A) オレフィン系共重合体と任意のポリプロピレン系樹脂からなる熱可塑性樹脂組成物の式 (1) で定義された X が式 (5) の条件を充足することを特徴とするオレフィン系共重合体を含む粘着剤層を基材の少なくとも一方の最外層に粘着剤層を形成してなる粘着フィルムまたはシート。

$$X = [A(T2M) - A(T2C)] / [| (T2A - T2B) |]$$

…式 (1)

$$X \leq 0.040$$

…式 (5)

【請求項 5】 請求項 1 または 2 記載の (A) オレフィン系共重合体と任意のポリプロピレン系樹脂からなる熱可塑性樹脂組成物の式 (6) で定義された弾性回復率 S が、 $S \geq 70$ の条件を充足することを特徴とするオレフィン系共重合体を含む粘着フィルムまたはシート。

$$\text{弾性回復率 } S (\%) = [(\text{応力残留変形回復率}) / (\text{伸張変形率})] \times 100$$

…式 (6)

【請求項 6】 熱可塑性樹脂からなる基材の少なくとも一方の最外層に、請

求項 1～5 記載のうちの一つの (A) オレフィン系共重合体と (B) 熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂組成物からなる粘着フィルムまたはシート。

【請求項 7】 請求項 6 記載の熱可塑性樹脂組成物のうち (B) が結晶性ポリオレフィン系樹脂であることを特徴とする粘着フィルムまたはシート。

【請求項 8】 基材と粘着剤層とが共押出加工することにより得られる請求項 1～7 のうちの一の請求項に記載の粘着フィルムまたはシート。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、基材の少なくとも一方の最外層に粘着剤層を設けてなる粘着フィルムまたはシートに関し、更に詳しくは、包装梱包用や識別、結束用、保護用に利用可能な粘着フィルムまたはシートに関するものであり、特に、合成樹脂板、化粧合板、金属板、塗装鋼板などの表面に粘着して、塵の付着や傷つきがないように、その表面を保護するために使用される粘着フィルムまたはシート、あるいは自動車などの焼き付け塗装時や、プリント基板のハンダ浸漬時の表面保護テープ用などをはじめとした粘着フィルムまたはシートに関するものである。

【0002】

【従来の技術】

従来より、被着体の表面保護を目的とした粘着フィルムまたはシートは、建築資材や電気、電子製品、自動車等の加工、保管、輸送時にもちいられており、このような粘着フィルムまたはシートは、良好な粘着性を有するとともに、使用後は、各表面を粘着剤で汚染することなく容易に引き剥がすことができなければならない。近年、可塑化塩化ビニル樹脂を基材とした粘着フィルムまたはシートに替わって、ポリオレフィン系樹脂を基材とした粘着フィルムまたはシートが使用されるようになってきた。が、これらのポリオレフィン系樹脂を基材とした粘着フィルムまたはシートは、主として EVA、低密度ポリエチレン等の低結晶性又は非晶質の粘着層や SIS、SEBS 等のエラストマーからなる粘着層を基材と共押出によって一体に形成されたものが使用されている。しかしながら、上記の粘着フィルムまたはシートは、高温環境下に置かれると、経時変化をおこし、そ

のため粘着力が上昇して被着体からの剥離が困難となったり、粘着剤が残存するなどの問題があった。また、高温環境下でも経時変化をおこさない粘着フィルムとして、特開平4-55488号公報には、熱可塑性樹脂からなる基材層の片面に、密度 0.92 g/cm^2 以下、メルトインデックス $1\sim 20\text{ g/10分}$ のポリエチレン又はエチレン/ α -オレフィン共重合体からなる粘着層が形成された表面保護フィルムが開示されている。又、特開平8-157791号公報には、重量平均分子量 M_w が 5×10^4 以上、重量平均分子量と数平均分子量 M_n の比 M_w/M_n が3以下、DSC分析における融解ピーク温度が 110°C 以上、融解熱が 100 J/g 以下であるエチレン- α -オレフィン共重合体からなる粘着層と他のポリオレフィン系樹脂からなる基材との表面保護フィルムが開示されている。しかしながら、これらの粘着フィルムは粘着性が低く、粘着力の制御が困難であり、また、特に低温での粘着性は極端に低下する。

【0003】

かかる状況において、本発明は、ある特定の物性を有する新規なオレフィン系共重合体及び、該オレフィン系共重合体を用いた熱可塑性樹脂組成物を用いた粘着フィルムまたはシートにより、これらの課題が解決されることを見出し、本発明に至った。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、使用温度範囲に係らず低温環境下や高温環境下でも極端な経時変化することなく、好適な粘着性、剥離性及び再粘着、再剥離性を維持し、剥離しても被着体の表面に粘着剤が残ることがない、柔軟性と耐熱性と耐寒性と耐候性のバランスに優れた、新規な粘着剤層からなる粘着フィルムまたはシートに関するものであり、更には、本発明の特定の重合体を含有する熱可塑性樹脂組成物を用いることにより、強粘着から弱粘着までの粘着力の制御が可能な粘着フィルムまたはシートに関するものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】

すなわち、本発明は、熱可塑性樹脂からなる基材の少なくとも一方の最外層に

粘着剤層を形成してなる粘着フィルムまたはシートにおいて、前記粘着剤層が炭素数 2～20 のうち、2 種類以上の α -オレフィンを必須とする (A) オレフィン系共重合体であって、該オレフィン系共重合体が (1) と

(2) を満たすことを特徴とする粘着フィルムまたはシートに係わるものである。

(1) 示差走査熱量計 (DSC) を用い、JIS K 7122 に準拠して測定した場合に、結晶の融解に基づく 1 J/g 以上のピーク、及び結晶化に基づく 1 J/g 以上のピークのいずれも有しない

(2) ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー (GPC) で測定される分子量分布 M_w/M_n が 3 以下

【0006】

【発明の実施の形態】

上記のように、本発明において用いられる粘着剤層の (A) オレフィン系共重合体は、炭素数 2～20 のうち、2 種類以上の α -オレフィンを必須とするオレフィン系共重合体である。更に、本発明を損なわない範囲において、必要に応じて他のモノマーを選択して共重合することができる。他のモノマーとしては、ポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択されるモノマー成分を共重合して得られる共重合体に関するものである。かかるオレフィン系共重合体を構成するモノマーの具体例としては下記 (a)～(d) のモノマーが例示される。

【0007】

(a) α -オレフィン

本発明で使用される、炭素数 2～20 の α -オレフィンとしては、直鎖状及び分岐状の α -オレフィンが含まれ、たとえば、直鎖状の α -オレフィンとしては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ナノデセン、1-エイコセン等が例示され、分岐状の α -オレフィンとしては、3-メチル-1-ブテン、3-メチル

1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、2-エチル-1-ヘキセン、2, 2, 4-トリメチル-1-ペンテン等が例示され、好ましくはエチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン等である。

【0008】

(b) ポリエン化合物

本発明において好適に使用されるポリエン化合物としては、二重結合間に単結合を1つ挟んだいわゆる共役ポリエン化合物や、それ以外の非共役ポリエン化合物が含まれる。共役ポリエン化合物としては、脂肪族共役ポリエン化合物及び脂環族共役ポリエン化合物等があげられる。脂肪族共役ポリエン化合物としては直鎖状脂肪族共役ポリエン化合物及び、分岐状脂肪族共役ポリエン化合物が含まれる。また、脂肪族共役ポリエン化合物及び脂環族共役ポリエン化合物は、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アラルキル基、アラルキルオキシ基等を含んでいてもよい。脂肪族共役ポリエン化合物としては、たとえば、1, 3-ブタジエン、イソプレン、2-エチル-1, 3-ブタジエン、2-プロピル-1, 3-ブタジエン、2-イソプロピル-1, 3-ブタジエン、2-ヘキシル-1, 3-ブタジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-ブタジエン、2, 3-ジエチル-1, 3-ブタジエン、2-メチル-1, 3-ペンタジエン、2-メチル-1, 3-ヘキサジエン、2-メチル-1, 3-オクタジエン、2-メチル-1, 3-デカジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-ペンタジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-ヘキサジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-オクタジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-デカジエン等が例示される。脂環族共役ポリエン化合物としては、たとえば、2-メチル-1, 3-シクロペンタジエン、2-メチル-1, 3-シクロヘキサジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-シクロペンタジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-シクロヘキサジエン、2-クロロ-1, 3-ブタジエン、2, 3-ジクロロ-1, 3-ブタジエン、1-フルオロ-1, 3-ブタジエン、2-クロロ-1, 3-ペンタジエン、2-クロロ-1, 3-シクロペンタジエン、2-クロロ-1, 3-シクロヘキサジエン等が例示される。

【0009】

非共役ポリエン化合物としては、脂肪族非共役ポリエン化合物、脂環族非共役ポリエン化合物及び芳香族非共役ポリエン化合物等があげられる。脂肪族非共役ポリエン化合物としては直鎖状脂肪族非共役ポリエン化合物及び分岐状脂肪族非共役ポリエン化合物が含まれる。また、脂肪族非共役ポリエン化合物、脂環族非共役ポリエン化合物及び芳香族非共役ポリエン化合物は、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アラルキル基、アラルキルオキシ基等を含んでいてもよい。脂肪族非共役ポリエン化合物のとしては、たとえば、1, 4-ヘキサジエン、1, 5-ヘキサジエン、1, 6-ヘプタジエン、1, 6-オクタジエン、1, 7-オクタジエン、1, 8-ノナジエン、1, 9-デカジエン、1, 13-テトラデカジエン、1, 5, 9-デカトリエン、3-メチル-1, 4-ヘキサジエン、4-メチル-1, 4-ヘキサジエン、5-メチル-1, 4-ヘキサジエン、4-エチル-1, 4-ヘキサジエン、3-メチル-1, 5-ヘキサジエン、3, 3-ジメチル-1, 4-ヘキサジエン、3, 4-ジメチル-1, 5-ヘキサジエン、5-メチル-1, 4-ヘプタジエン、5-エチル-1, 4-ヘプタジエン、5-メチル-1, 5-ヘプタジエン、6-メチル-1, 5-ヘプタジエン、5-エチル-1, 5-ヘプタジエン、3-メチル-1, 6-ヘプタジエン、4-メチル-1, 6-ヘプタジエン、4, 4-ジメチル-1, 6-ヘプタジエン、4-エチル-1, 6-ヘプタジエン、4-メチル-1, 4-オクタジエン、5-メチル-1, 4-オクタジエン、4-エチル-1, 4-オクタジエン、5-エチル-1, 4-オクタジエン、5-メチル-1, 5-オクタジエン、6-メチル-1, 5-オクタジエン、5-エチル-1, 5-オクタジエン、6-エチル-1, 5-オクタジエン、6-メチル-1, 6-オクタジエン、7-メチル-1, 6-オクタジエン、6-エチル-1, 6-オクタジエン、6-プロピル-1, 6-オクタジエン、6-ブチル-1, 6-オクタジエン、4-メチル-1, 4-ノナジエン、5-メチル-1, 4-ノナジエン、4-エチル-1, 4-ノナジエン、5-エチル-1, 4-ノナジエン、5-メチル-1, 5-ノナジエン、6-メチル-1, 5-ノナジエン、5-エチル-1, 5-ノナジエン、6-エチル-1, 5-ノナジエン、6-メチル-1, 6-ノナジエン、7-メチル-1, 6-ノナジエン、

6-エチル-1, 6-ノナジエン、7-エチル-1, 6-ノナジエン、7-メチル-1, 7-ノナジエン、8-メチル-1, 7-ノナジエン、7-エチル-1, 7-ノナジエン、5-メチル-1, 4-デカジエン、5-エチル-1, 4-デカジエン、5-メチル-1, 5-デカジエン、6-メチル-1, 5-デカジエン、5-エチル-1, 5-デカジエン、6-エチル-1, 5-デカジエン、6-メチル-1, 6-デカジエン、6-エチル-1, 6-デカジエン、7-メチル-1, 6-デカジエン、7-エチル-1, 6-デカジエン、7-メチル-1, 7-デカジエン、8-メチル-1, 7-デカジエン、7-エチル-1, 7-デカジエン、8-エチル-1, 7-デカジエン、8-メチル-1, 8-デカジエン、9-メチル-1, 8-デカジエン、8-エチル-1, 8-デカジエン、6-メチル-1, 6-ウンデカジエン、9-メチル-1, 8-ウンデカジエン、6, 10-ジメチル1, 5, 9-ウンデカトリエン、5, 9-ジメチル-1, 4, 8-デカトリエン、4-エチリデン8-メチル-1, 7-ノナジエン、13-エチル-9-メチル-1, 9, 12-ペンタデカトリエン、5, 9, 13-トリメチル-1, 4, 8, 12-テトラデカジエン、8, 14, 16-トリメチル-1, 7, 14-ヘキサデカトリエン、4-エチリデン-12-メチル-1, 11-ペンタデカジエン等が例示される。脂環族非共役ポリエン化合物としては、たとえば、ビニルシクロヘキセン、5-ビニル-2-ノルボルネン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-メチレン-2-ノルボルネン、5-イソプロペニル-2-ノルボルネン、シクロヘキサジエン、ジシクロペンタジエン、シクロオクタジエン、2, 5-ノルボルナジエン、2-メチル-2, 5-ノルボルナジエン、2-エチル-2, 5-ノルボルナジエン、2, 3-ジイソプロピリデン-5-ノルボルネン、2-エチリデン-3-イソプロピリデン-5-ノルボルネン、6-クロロメチル-5-イソプロペニル-2-ノルボルネン、1, 4-ジビニルシクロヘキサン、1, 3-ジビニルシクロヘキサン、1, 3-ジビニルシクロペンタン、1, 5-ジビニルシクロオクタン、1-アリル-4-ビニルシクロヘキサン、1, 4-ジアリルシクロヘキサン、1-アリル-5-ビニルシクロオクタン、1, 5-ジアリルシクロオクタン、1-アリル-4-イソプロペニルシクロヘキサン、1-イソプロペニル-4-ビニルシクロヘキサン、1-イソプロペニル-3-ビニルシク

ロペンタン、メチルテトラヒドロインデン等が例示される。芳香族非共役ポリエン化合物としては、たとえば、ジビニルベンゼン、ビニルイソプロペニルベンゼン等があげられる。

【0010】

(c) 環状オレフィン化合物

本発明で使用されるオレフィン系共重合体を構成するに使用される、環状オレフィンとしては、たとえば、ノルボルネン、5-メチルノルボルネン、5-エチルノルボルネン、5-プロピルノルボルネン、5,6-ジメチルノルボルネン、1-メチルノルボルネン、7-メチルノルボルネン、5,5,6-トリメチルノルボルネン、5-フェニルノルボルネン、5-ベンジルノルボルネン、5-エチリデンノルボルネン、5-ビニルノルボルネン、1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-メチル-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-エチル-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2,3-ジメチル-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-ヘキシル-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-エチリデン-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-フルオロ-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、1,5-ジメチル-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-シクロヘキシル-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-ジクロロ-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、2-イソブチル-1,4,5,8-ジメタノー1,2,3,4,4a,5,8,8a-オクタヒドロナフタレン、1,2-ジヒドロジシクロペンタジエン、5-クロロノルボルネン、5,5-ジクロロノルボルネン、5-フルオロノルボルネン、5,5,6-トリフルオロ-6-トリフルオロメチルノルボルネン、5-クロロメチルノルボルネン、5-メトキ

シノルボルネン、5, 6-ジカルボキシルノルボルネンアンハイドレート、5-ジメチルアミノノルボルネン、5-シアノノルボルネン、シクロペンテン、3-メチルシクロペンテン、4-メチルシクロペンテン、3, 4-ジメチルシクロペンテン、3, 5-ジメチルシクロペンテン、3-クロロシクロペンテン、シクロヘキセン、3-メチルシクロヘキセン、4-メチルシクロヘキセン、3, 4-ジメチルシクロヘキセン、3-クロロシクロヘキセン、シクロヘプテン等が例示される。

【0011】

(d) ビニル芳香族化合物

本発明で使用されるオレフィン系共重合体を構成するに使用されうるビニル芳香族化合物としては、たとえばスチレン、 α -メチルスチレン、p-メチルスチレン、ビニルキシレン、モノクロルスチレン、ジクロルスチレン、モノブロムスチレン、ジブロムスチレン、フルオロスチレン、p-tert-ブチルスチレン、エチルスチレン、ビニルナフタレン等が例示される。

【0012】

更に本発明においては、本発明の目的のひとつである被着体への安定した粘着力の観点からは、上記モノマーの中から選択された特定のモノマーの組み合わせからなる重合体を使用することが好ましく、かかる好ましい重合体の例としては下記(1)～(24)の組み合わせがあげられる。

- (1) エチレン 及び、炭素数3～20の α -オレフィンを必須とし、任意にポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択される1種類以上のモノマー成分を共重合して得られるオレフィン系共重合体
- (2) エチレン及び炭素数4～20の α -オレフィンを必須として、任意にポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択される1種類以上のモノマー成分を共重合して得られるオレフィン系共重合体
- (3) エチレン、プロピレン、及び炭素数4～20の α -オレフィンを必須成分として、任意にポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択される1種類以上のモノマー成分を共重合して得られるオレフィン系共重合体
- (4) プロピレン、及び炭素数4～20の α -オレフィンを必須成分として、任意

にポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択される 1 種類以上のモノマー成分を共重合して得られるオレフィン系共重合体

(5)エチレン、炭素数 3 ～ 2 0 の α - オレフィンからなるオレフィン系共重合体

(6)エチレン、炭素数 3 ～ 2 0 の α - オレフィン及びポリエン化合物からなるオレフィン系共重合体

(7)エチレン、炭素数 3 ～ 2 0 の α - オレフィン及び環状オレフィン化合物からなるオレフィン系共重合体

(8)エチレン、炭素数 3 ～ 2 0 の α - オレフィン及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

(9)エチレン、炭素数 3 ～ 2 0 の α - オレフィン、ポリエン化合物及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

(10)エチレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィンからなるオレフィン系共重合体

(11)エチレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィン及びポリエン化合物からなるオレフィン系共重合体

(12)エチレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィン及び環状オレフィン化合物からなるオレフィン系共重合体

(13)エチレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィン及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

(14)エチレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィン、ポリエン化合物及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

(15)エチレン、プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィンからなるオレフィン系共重合体

(16)エチレン、プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィン及びポリエン化合物からなるオレフィン系共重合体

(17)エチレン、プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィン及び環状オレフィン化合物からなるオレフィン系共重合体

(18)エチレン、プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α - オレフィン及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

(19) エチレン、プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィン、ポリエン化合物及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

(20) プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体

(21) プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィン及びポリエン化合物からなるオレフィン系共重合体

(22) プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィン及び環状オレフィン化合物からなるオレフィン系共重合体

(23) プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィン及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

(24) プロピレン、炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィン、ポリエン化合物及びビニル芳香族化合物からなるオレフィン系共重合体

【 0 0 1 3 】

これらのうち、本発明の粘着剤層が、特に低温環境下での安定した粘着力を有するという観点からは、下記の特定の組み合わせからなる重合体を使用することが好ましい。

(1) エチレン及び炭素数 3 ～ 2 0 の α -オレフィンを必須として、任意にポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択される 1 種類以上のモノマー成分を共重合して得られるオレフィン系共重合体。

(2) エチレン及び炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィンを必須として、任意にポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択される 1 種類以上のモノマー成分を共重合して得られるオレフィン系共重合体。

(3) エチレン、プロピレン、及び炭素数 4 ～ 2 0 の α -オレフィンを必須成分として、任意にポリエン化合物、環状オレフィン及びビニル芳香族化合物から選択される 1 種類以上のモノマー成分を共重合して得られるオレフィン系共重合体

【 0 0 1 4 】

これらのうち、本発明の粘着剤の耐候性という観点からは、下記の特定の組み合わせからなる重合体を使用することが好ましい。

(5) エチレン、炭素数 3 ～ 2 0 の α -オレフィンからなるオレフィン系共重合体

(10) エチレン、炭素数 4 ～ 20 の α -オレフィンからなるオレフィン系共重合体

(15) エチレン、プロピレン、炭素数 4 ～ 20 の α -オレフィンからなるオレフィン系共重合体

(20) プロピレン、炭素数 4 ～ 20 の α -オレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体

【0015】

次に、本発明で粘着剤層に使用されるオレフィン系共重合体は、示差走査熱量計 (DSC) を用い、J I S K 7 1 2 2 に準拠して測定した場合に、結晶の融解に基づく 1 J/g 以上のピーク、及び結晶化に基づく 1 J/g 以上のピークのいずれをも有しない、より好ましくは結晶の融解に基づく 0.5 J/g 以上のピーク、及び結晶化に基づく 0.5 J/g 以上のピークのいずれをも有しない。この条件を満足しない場合は、それを含んで構成される、粘着剤の低温環境下での安定した粘着力に劣る場合がある。示差走査熱量計は、たとえばセイコー電子工業社製 DSC 220C を用い、昇温及び降温過程のいずれも $10^\circ\text{C}/\text{min}$ の速度で測定を行う。

【0016】

本発明の粘着剤層に使用されるオレフィン系共重合体は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) によって測定した分子量分布 (M_w/M_n) が 3 以下であり、より好ましくは 2.8 以下、更に好ましくは 2.5 以下である。分子量分布が広すぎる場合には、低分子量成分のブリードアウトが増加し、それを含んで構成される粘着剤の、特に高温環境下での安定した粘着力が十分でなかったり、使用後の被着体表面を汚染する。

【0017】

分子量分布はゲルパーミエーションクロマトグラフ (GPC) 法 (たとえば、Waters 社製、 $150^\circ\text{C}/\text{GPC}$ 装置) により行う。溶出温度は 140°C 、使用カラムは、たとえば昭和電工社製 Shodex Packed Column A-80M、分子量標準物質はポリスチレン (たとえば、東ソー社製、分子量 68-8, 400, 000) を用いる。得られたポリスチレン換算重量平均分子

量 (M_w)、数平均分子量 (M_n)、更にこの比 (M_w/M_n) を分子量分布とする。測定サンプルは約 5 mg の重合体を 5 ml の α -ジクロロベンゼンに溶解、約 1 mg/ml の濃度とする。得られたサンプル溶液の 400 μ l をインジェクションし、溶出溶媒流速は 1.0 ml/min とし、屈折率検出器にて検出する。

【0018】

次に、本発明の粘着剤層に使用されるオレフィン系共重合体は、温度 135℃ におけるテトラリン溶媒による極限粘度 $[\eta]$ が 0.5 dl/g 以上 10 dl/g 以下であり、より好ましくは 1.0 dl/g 以上 8.0 dl/g 以下であり、更に好ましくは 1.3 dl/g 以上 6.0 dl/g 以下である。該極限粘度が低すぎると、粘着剤層の凝集力が劣るため、剥離後の被着体表面に糊残りを生じ、また、得られるオレフィン系共重合体の耐熱性に劣る場合があるため、それを含んで構成される粘着剤層の高温環境下での粘着力に劣る場合がある。一方、該極限粘度が高すぎると、得られるオレフィン系共重合体の柔軟性に劣る場合があるため、それを含んで構成される粘着剤の粘着力におとる場合がある。

【0019】

極限粘度 $[\eta]$ の測定は、135℃ テトラリン中でウペローデ粘度計を用いて行う。サンプルは 300 mg を 100 ml テトラリンに溶解し、3 mg/ml の溶液を調製した。更に当該溶液を 1/2、1/3、1/5 に希釈し、それぞれを 135℃ ($\pm 0.1^\circ\text{C}$) の恒温油槽中で測定する。それぞれの濃度で 3 回繰り返し測定し、得られた値を平均して用いる。

【0020】

本発明で使用されるオレフィン系共重合体は、任意のポリプロピレン系樹脂とからなる熱可塑性樹脂組成物の式 (1) で定義された X が式 (2) の条件を充足するオレフィン系共重合体であることが好ましい。

$$X = [A(T_2M) - A(T_2C)] / [| (T_2A - T_2B) |]$$

…式 (1)

$$X \geq 0.020$$

…式 (2)

該範囲を外れると、得られるオレフィン系共重合体及び、該オレフィン系共重合

体を含む熱可塑性樹脂組成物の柔軟性及び、表面性状安定性に劣るため、得られる粘着フィルムまたはテープの安定した粘着力に劣る場合がある。好ましくは、

$$X \geq 0.030$$

より好ましくは

$$X \geq 0.040$$

更に好ましくは

$$X \geq 0.050$$

特に好ましくは

$$X \geq 0.060$$

である。

【0021】

A (T2M)、A (T2C) は、熱可塑性樹脂組成物の T2 緩和時間を縦軸に、熱可塑性樹脂組成物中に含有されるオレフィン系共重合体の重量分率 P_a を横軸にプロットして得られる曲線の 3 次回帰により求められる重回帰式を 0 から 1 の範囲で定積分して得られる値である。A (T2M) はパルス NMR 測定から求められる熱可塑性樹脂組成物の T2 緩和時間 T2M を用いて計算された数値であり、A (T2C) は下記式 (3) から求められる T2 緩和時間である。T2A 及び、T2B はパルス NMR 測定から求められるポリプロピレン系樹脂及びオレフィン系共重合体の T2 緩和時間である。尚、T2A、T2B、T2M はパルス NMR の自由誘導減衰 (FID) の 70 ~ 150 μs の範囲から求められる T2 緩和時間とする。また、A (T2M)、A (T2C) の算出に使用される重回帰式は熱可塑性樹脂組成物中に含有されるオレフィン系共重合体の重量分率 P_a が 0、0.2、0.4、0.6、0.8、1 の少なくとも 6 点の値を使用して算出する。

$$T2C = 1 / [P_v A \times (1 / T2A) + (1 - P_v A) \times (1 / T2B)]$$

…式 (3)

【0022】

この時、P_vA は式 (4) で定義される数値であり、熱可塑性樹脂組成物のパ

ルスNMRの自由誘導減衰 (FID) の $70 \sim 150 \mu\text{S}$ の範囲に観測される成分中にポリプロピレン系樹脂成分の占める体積分率である。式 (4) に含まれる VA 及び、VB はポリプロピレン系樹脂及び熱可塑性樹脂組成物のパルスNMRの自由誘導減衰 (FID) の $70 \sim 150 \mu\text{S}$ の範囲に観測される成分の体積分率である。

$$P_{VA} = [VA \times (1 - P_a)] / VB \quad \dots \text{式 (4)}$$

【0023】

パルスNMRから求められる緩和時間 T_2 とは、スピンスピン緩和時間 (または横緩和時間) と呼ばれるものである。一般に、単一の 90° パルス後に生じる自由誘導減衰 (FID: Free Induction Decay) は $\exp(-t/T_2)$ に従って減衰するので、これから T_2 を求めることができる。

【0024】

パルスNMRによるスピンスピン緩和時間 T_2 の測定は、例えば、西等の J. Chem. Phys. 82、4327 (1985) が挙げられる。具体的には、JEOL社製、JNM-MU 25 パルスNMR装置を用い、 30°C 条件下、測定周波数 25MHz にて観測核を ^1H として、測定パルス系列をソリッド・エコー法により測定できる。観測パルス幅を $2.0 \mu\text{s}$ 、FID (自由誘導減衰) 観測後、次のパルスを与えるまでの待ち時間を1秒とし、積算回数は64回とした。

【0025】

本発明で使用する緩和時間 T_2 は、自由誘導減衰 (FID) の $70 \sim 150 \mu\text{S}$ の範囲から求められる緩和時間 T_2 を使用する。上記方法で得られた、自由誘導減衰 (FID) データから、 $70 \mu\text{S}$ から $150 \mu\text{S}$ 間の41の減衰時間 t と巨視的磁化 $M(t)$ 値を抽出し、 $t - \ln M(t)$ に変換した関係を最小二乗法で直線近似し、得られた直線の傾きの絶対値の逆数を緩和時間 T_2 とする。VA および、VB は自由誘導減衰 (FID) の① $0 \sim 70 \mu\text{S}$ 、② $70 \sim 150 \mu\text{S}$ 及び、③ $150 \mu\text{S} \sim$ の各体積分率から算出することができる。より具体的には自由誘導減衰 (FID) の① $0 \sim 70 \mu\text{S}$ 範囲に含まれる最大巨視的磁場 $M(t)_{\text{max}}$ 、② $70 \mu\text{S}$ の $M(70)$ 及び、③ $150 \mu\text{S}$ の $M(150)$ を抽出し

、 $[M(70) - M(150)] / M(t)_{\max}$ より求められる。

【0026】

本発明に記載されている、ポリプロピレン系樹脂としては、アイソタクチックシーケンス構造もしくはシンジオタクチックシーケンス構造を主として有する結晶性のポリプロピレンで、ホモタイプやコモノマーを含むランダムタイプ、もしくは、多段重合によるブロックタイプ等広範な構造のものが使用可能である。

【0027】

ポリプロピレン系樹脂としては、第一にプロピレンを単独重合することによって得られるホモポリプロピレンが挙げられる。

ポリプロピレン系樹脂としては、第二にプロピレンとプロピレン以外のオレフィンとを共重合させることによって得られるランダムポリプロピレンが挙げられる。

【0028】

ポリプロピレン系樹脂としては、第三にプロピレンとプロピレン以外のオレフィンを2段階以上の多段で共重合させることにより得られるポリプロピレン系樹脂が挙げられる。より詳細には、第一段階においてプロピレンの単独重合体又はプロピレンとプロピレン以外の共重合体を得て、第二段階以降においてプロピレンとプロピレン以外の共重合体を得るポリプロピレン系樹脂である。

【0029】

また、オレフィン系共重合体と、ポリプロピレン系樹脂とのブレンドは、各成分を、通常の混練り装置、たとえばラバーミル、ブラベンダーミキサー、バンバリーミキサー、加圧ニーダー、ルーダー、二軸押出機等を用いて混練すればよい。混練り温度は、混合された成分のすべてが溶融する温度であり、通常160～250℃とされ、好ましくは180～240℃とされる。得られた樹脂組成物は、JIS K 6758に準拠した方法で、所定の厚さにプレス成形してサンプルとする。

【0030】

本発明で使用されるオレフィン系共重合体は、任意のポリプロピレン系樹脂と

からなる熱可塑性樹脂組成物の式 (1) で定義された X が式 (5) の条件を充足することが好ましい。

$$X = [A(T2M) - A(T2C)] / [| (T2A - T2B) |]$$

…式 (1)

$$X \leq 0.400$$

…式 (5)

該範囲を外れると、得られるオレフィン系共重合体及び、該オレフィン系共重合体を含有する熱可塑性樹脂組成物の柔軟性に劣る場合があるため、得られる粘着フィルムまたはテープの安定した粘着力及び粘着力の制御性に劣る場合がある。

好ましくは

$$X \leq 0.380$$

より好ましくは

$$X \leq 0.360$$

より好ましくは

$$X \leq 0.340$$

より好ましくは

$$X \leq 0.320$$

より好ましくは

$$X \leq 0.300$$

である。

【0031】

また、本発明のオレフィン系共重合体を含有する粘着フィルムまたはテープの耐熱形状保持性や高引張伸び特性を要求される場合には、

好ましくは

$$X \leq 0.250$$

より好ましくは

$$X \leq 0.200$$

より好ましくは

$$X \leq 0.150$$

である。

【 0 0 3 2 】

該範囲を外れると、得られるオレフィン系共重合体及び、該オレフィン系共重合体を含有する熱可塑性樹脂組成物の耐熱形状保持性や高引張伸び特性が劣る場合があるため、得られる粘着フィルムまたはテープの耐熱性や貼り付け作業性に劣る場合がある。

【 0 0 3 3 】

本発明で使用される（A）オレフィン系共重合体と任意のポリプロピレン系樹脂からなる熱可塑性樹脂組成物の式（6）で定義された弾性回復率 S が $S \geq 70$ の条件を充足することを特徴とするオレフィン系共重合体を含有することが好ましい。

$$\text{弾性回復率 } S (\%) = [(\text{応力残留変形回復率}) / (\text{伸張変形率})] \times 100$$

…式（6）

（但し、弾性回復率 S は熱可塑性樹脂 20～40 重量% 及び、オレフィン系共重合体 80～60 重量% 条件において定義されるものとする。）

好ましくは

$$S \geq 72$$

より好ましくは

$$S \geq 74$$

更に好ましくは

$$S \geq 76$$

更に好ましくは

$$S \geq 78$$

特に好ましくは

$$S \geq 80$$

である。

【 0 0 3 4 】

該範囲を外れると、得られるオレフィン系共重合体及び、該オレフィン系共重合体を含有する熱可塑性樹脂組成物の柔軟性と形状保持性のバランスに劣る場合があるため、得られる粘着フィルムまたはテープの安定した粘着力に劣ったり、

使用後の被着体表面を汚染する場合がある。

【0035】

弾性回復率Sとは、ヒステリシス曲線より得られる伸張変形率に対する応力残留回復率の比である。試験片を所定の長さ（伸張変形率％）に伸張し、切断する前に荷重を減らし、縮めていくと、伸ばしたときと別な曲線をたどり、荷重をゼロにしても伸びはゼロとはならない。この曲線をヒステリシス曲線と呼ぶ。

【0036】

より具体的には以下の方法で測定することができる。試験片形状をJIS-K-6251準拠のダンベル状1号型（標線間距離40mm）、厚さ0.5mmとする。東洋精機製作所社製ストログラフRを用いクロスヘッドスピード200mm/minで標線間距離80mm（伸張変形率100％）まで伸張する。伸張後、直ちにクロスヘッドをリバースさせ、伸張時と同様に200mm/minで応力がゼロになるまで収縮させる。チャートから伸張変形率に相当する寸法及び、応力残留回復率に相当する寸法を測り伸張変形率及び、応力残留回復率を算出する。試験片の数は3個とし、相加平均値を測定結果として使用する。

【0037】

本発明で使用される（A）オレフィン系共重合体と任意のポリプロピレン系樹脂からなる熱可塑性樹脂組成物のJIS K7203に準拠し測定された曲げ弾性率（ U_a (MPa)）が下記式（7）の関係を充足することを特徴とするオレフィン系共重合体を含有することが好ましい。

$$U_a \leq 1.5 \times S_a \times (T_a / 100)^{3.3} \quad \dots \text{式 (7)}$$

（但し、曲げ弾性率（ U_a ）は、（B）熱可塑性樹脂80～60重量％及び、（A）オレフィン共重合体20～40重量％からなる熱可塑性樹脂組成物から定義される数値とする。）より好ましくは、

$$U_a \leq 1.4 \times S_a \times (T_a / 100)^{3.3}$$

更に好ましくは、

$$U_a \leq 1.3 \times S_a \times (T_a / 100)^{3.3}$$

特に好ましくは、

$$U_a \leq 1.2 \times S_a \times (T_a / 100)^{3.3}$$

である。上記範囲を外れると、得られるオレフィン系共重合体及び、該オレフィン系共重合体を含む熱可塑性樹脂組成物の柔軟性に劣る場合があるため、得られる粘着フィルムまたはテープの粘着力に劣る場合がある。なお、上記式において、 Sa はブレンドに用いた (B) 熱可塑性樹脂の J I S K 7 2 0 3 に準拠し測定された曲げ弾性率 (M P a) を表し、 Ta は熱可塑性樹脂組成物中の (B) の添加重量部数 (重量%) を表す。

【 0 0 3 8 】

本発明で使用するオレフィン系共重合体は、(B) 熱可塑性樹脂とブレンドした場合に得られる熱可塑性樹脂の J I S K 6 2 5 1 に準拠して測定した引張切断時伸びが下記式 (8) の関係を充足することを特徴とするオレフィン系共重合体を含むことが好ましい。

$$EB① \geq EB② - 30 \quad \cdots \text{式 (8)}$$

(但し、 $EB①$ は (B) 熱可塑性樹脂 3 0 重量% 及び、(A) オレフィン系共重合体 7 0 重量% からなる熱可塑性樹脂組成物の引張切断時伸び (%) であり、 $EB②$ は (B) 熱可塑性樹脂 7 0 重量% 及び、(A) オレフィン系共重合体 3 0 重量% からなる熱可塑性樹脂組成物の引張切断時伸び (%) である。)

より好ましくは

$$EB① \geq EB② - 20$$

更に好ましくは

$$EB① \geq EB② - 10$$

特に好ましくは

$$EB① \geq EB②$$

【 0 0 3 9 】

該範囲を外れると、得られるオレフィン系共重合体及び、該オレフィン系共重合体を含む熱可塑性樹脂組成物の柔軟性に劣る場合があるため、得られる粘着フィルム及び、テープの粘着力に劣る場合がある。尚、J I S K 6 2 5 1 に準拠して得られた、熱可塑性樹脂組成物の引張切断時伸び (%) は、例えば試験片形状をダンベル状 3 号型とし、引張速度 2 0 0 m m / m i n の引張速度で測定することができる。

【0040】

次に、本発明の粘着剤層に使用されるオレフィン系共重合体は、公知のチーグラ・ナッタ型触媒、又は公知のシングルサイト触媒（メタロセン系等）を用いて製造することができるが、得られる重合体の組成分布の均一性という観点からは、公知のチーグラ・ナッタ型触媒の一般式 $VO(OR)_nX_{3-n}$ （ただしRは炭化水素基、Xはハロゲン、 $0 \leq n \leq 3$ ）で示されるバナジウム化合物又は、公知のシングルサイト触媒（メタロセン系等）が好ましく、かかるシングルサイト触媒の例としては、たとえば特開昭58-19309号公報、特開昭60-35005号公報、特開昭60-35006号公報、特開昭60-35007号公報、特開昭60-35008号公報、特開昭61-130314号公報、特開平3-163088号公報、特開平4-268307号公報、特開平9-12790号公報、特開平9-87313号公報、特開平10-508055号公報、特開平11-80233号公報、特表平10-508055号公報、等に記載のメタロセン系触媒、特開平10-316710号公報、特開平11-100394号公報、特開平11-80228号公報、特開平11-80227号公報、特表平10-513489号公報、特開平10-338706号公報、特開表11-71420号公報記載の非メタロセン系の錯体触媒を例示することができるが、これらの中でも、一般的にはメタロセン触媒が使用され、その中でも好適なメタロセン触媒の例としては、シクロペンタジエン形アニオン骨格を少なくとも1個有し、かつ得られる重合体の柔軟性という観点からは、 C_1 対称構造を有する周期表第3族～第12族の遷移金属錯体が好ましい。更に、高分子量の重合体を得るに際してのメタロセン触媒を用いた好適な製造方法の例として、特願平11-206054の方法を例示することができる。

【0041】

続いて本発明の粘着剤層に使用されるオレフィン系共重合体と熱可塑性樹脂から導かれる、熱可塑性樹脂組成物について説明する。

【0042】

本発明の粘着剤層に使用される熱可塑性樹脂組成物は、本発明で使用される（A）オレフィン系共重合体及び（B）熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂組成

物からなる。

【0043】

本発明で使用する熱可塑性樹脂組成物に用いられる成分（B）熱可塑性樹脂は、公知の各種熱可塑性樹脂から広範に選択することができるが、たとえばポリプロピレン系樹脂、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）等のポリエチレン系樹脂、エチレンとアクリル酸系モノマーとの共重合体樹脂、エチレンと酢酸ビニル系モノマーとの共重合体樹脂、エチレンとメタクリル酸系モノマーとの共重合体樹脂、ポリブテン系樹脂、ポリ-4-メチルペンテン-1系樹脂、ポリスチレン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリフェニレンオキサイド樹脂、ポリアセタール系樹脂、ポリカーボネート系樹脂等があげられる。好ましくはポリオレフィン系樹脂である。より好ましくは炭素数2以上の脂肪族オレフィンを主成分とするポリオレフィン系樹脂であり、更に好ましくは、結晶性のポリエチレン系樹脂又は、結晶性のポリプロピレン系樹脂である。

【0044】

上記の結晶性のポリエチレン系樹脂又は、結晶性のポリプロピレン系樹脂の結晶性の指標としては、たとえば、融点、結晶融解熱量などが用いられ、融点は80℃～176℃、結晶融解熱量は30J/g～120J/gの範囲にあることが好ましい。更には、融点は90℃～176℃、結晶融解熱量は60J/g～120J/gの範囲にあることが好ましい。結晶の融点が低すぎる、又は融解熱量が低すぎると、得られる熱可塑性樹脂組成物の耐熱性が低下する場合があるため、それを含有する粘着剤の高温環境下での粘着力が低下や、剥離した後の被着体の表面を汚染する場合がある。

【0045】

本発明の粘着剤層は（A）オレフィン系共重合体（B）熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂組成物である場合、それぞれの使用量は特に制限はないが、柔軟性と耐熱性という観点からは、熱可塑性樹脂組成物を構成する熱可塑性樹脂／オレフィン系共重合体の重量比が1/99～95/5であることが好ましく、より

好ましくは3/97~90/10、特に好ましくは5/95~80/20である。また、(B)の熱可塑性樹脂の添加量によって、粘着力の制御が可能であり、特に(B)として結晶性のポリオレフィン系樹脂を用いた場合が好ましく、例えば(A)オレフィン系共重合体に対する(B)結晶性のポリオレフィン系樹脂の添加量を増加させるほど粘着力は低下し、弱粘着用途として使用することができる。

【0046】

本発明の粘着剤層に使用される熱可塑性樹脂組成物は、本発明の目的を損なわない範囲において、必要に応じて他の公知の熱可塑性樹脂、ゴム、その他の成分を選択して適宜配合することが可能であり、本発明で使用される熱可塑性樹脂組成物は、(i)熱可塑性樹脂、(ii)本発明で使用されるオレフィン系共重合体、(iii)その他のエラストマーを必須成分として含んでなる熱可塑性樹脂組成物として用いることもできる。(i)熱可塑性樹脂としては、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン等のポリエチレン樹脂、各種ポリプロピレン系樹脂、各種ポリブテン系樹脂、各種ポリ-4-メチルペンテン-1系樹脂、ポリスチレン系樹脂、エチレンとアクリル酸系モノマーとの共重合体樹脂、エチレンと酢酸ビニル系モノマーとの共重合体樹脂、エチレンとメタクリル酸系モノマーとの共重合体樹脂、アクリル樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリフェニレンオキサイド樹脂、ポリアセタール系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ナイロン系樹脂、ポリビニルアルコール系樹脂等々から選択して用いることができ、(iii)その他のエラストマーとしては、たとえば、エチレン/ α -オレフィン系共重合体ゴム、エチレン/ α -オレフィン/ポリエン系共重合体ゴム、ビニル芳香族化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックとからなるブロック共重合体もしくは、該ブロック共重合体の水素添加物であり、たとえば、スチレン系ゴムとしてスチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体(SBS)、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体(SIS)、水添スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体(SEPS)、水添スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体(SEBS)等、ゴム成分たとえば

、天然ゴム、ポリブタジエン、液状ポリブタジエン、ポリアクリロニトリルゴム、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体ゴム、部分水添アクリロニトリル-ブタジエン共重合体ゴム、ブチルゴム、クロロプレンゴム、フッ素ゴム、クロロスルホン化ポリエチレン、シリコンゴム、ウレタンゴム、イソブチレン-イソプレン共重合体ゴム、ハロゲン化イソブチレン-イソプレン共重合体ゴム等が例示できる。

【 0 0 4 7 】

本発明の粘着剤層に使用されるオレフィン系共重合体及び、熱可塑性樹脂組成物は、必要に応じて、従来公知の方法により、イオウ架橋、過酸化物架橋、金属イオン架橋、シラン架橋、樹脂架橋などの架橋を行うこともできる。架橋剤としては、ゴムの加硫に一般的に用いられている架橋剤を用いることができ、硫黄、フェノール樹脂、金属酸化物、金属水酸化物、金属塩化物、p-キノンジオキシム又はビスマレイミド系の架橋剤などを例示することができる。架橋剤は単独でも使用できるが、架橋速度を調節するために、架橋促進剤を併用してもよい。架橋促進剤としては、鉛丹、ジベンゾチアソイルサルファイドなどの酸化剤を用いることができる。また分散剤として酸化亜鉛のような金属酸化物やステアリン酸などを併用してもよい。金属酸化物としては、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化鉛、酸化カルシウムなどが用いられ、好ましくは酸化亜鉛又は酸化マグネシウムである。また、本発明の粘着剤層に使用される熱可塑性樹脂組成物は、架橋剤の存在下で動的架橋して架橋物を得ることができる。

【 0 0 4 8 】

本発明の粘着剤層で使用される熱可塑性樹脂組成物を得る方法として、上記で説明した各成分を、通常の混練り装置、たとえばラバーミル、ブラベンダーミキサー、パンバリーミキサー、加圧ニーダー、ルーダー、二軸押出機等を用いて混練すればよい。混練り装置としては、密閉式及び開放式のいずれの装置であってもよいが、不活性ガスによって置換できる密閉式タイプの装置が好ましい。混練り温度は、混合された構成成分のすべてが溶融する温度であり、通常120～250℃とされ、好ましくは140～240℃とされる。混練り時間は、混合された構成成分の種類、量及び混練り装置の種類に依存するため一概に論じられない

が、加圧ニーダー、バンバリーミキサーなどの混練り装置を使用する場合には、通常、約3～10分程度とされる。なお、混練り工程においては、各構成成分を一括して混練りしてもよく、また一部の構成成分を混練りした後、残部の構成成分を添加して混練りを継続する多段分割混練り法を採用することもできる。

【0049】

本発明の粘着剤層に使用される熱可塑性樹脂組成物は、本発明の目的を損なわない範囲において、必要に応じて他の樹脂成分たとえば、ロジン系樹脂、ポリテルペン系樹脂、合成石油樹脂、クマロン系樹脂、フェノール系樹脂、キシレン系樹脂、スチレン系樹脂及びイソプレン系樹脂などを適宜配合することができる。ロジン系樹脂としては、天然ロジン、重合ロジン、部分及び完全水添ロジン、これら各種ロジンのグリセリンエステル、ペンタエリスリトールエステル、エチレングリコールエステル、メチルエステルなどのエステル化物、更には、不均化、フマル化、ライム化あるいはこれらを適宜組み合わせたロジン誘導体があげられる。ポリテルペン系樹脂としては、 α -ピネン、 β -ピネン、ジペンテンなどの環状テルペンの単独重合体あるいは共重合体及び上記の各種のテルペンとフェノール、ビスフェノールなどのフェノール系化合物との共重合体である α -ピネン-フェノール樹脂、ジペンテン-フェノール樹脂、テルペン-ビスフェノール樹脂などのテルペン-フェノール系樹脂、更には上記各種テルペンと芳香族モノマーとの共重合体である芳香族変性テルペン樹脂があげられる。合成石油樹脂としては、ナフサ分解油の C_5 留分、 $C_6 \sim C_{11}$ 留分及びその他オレフィン系留分の単独重合体あるいは共重合体及びこれら重合体の水添物である脂肪族系石油樹脂、芳香族系石油樹脂、脂環族系石油樹脂、脂肪族-脂環族共重合樹脂などがあげられる。

【0050】

更に、上記の各種のナフサ分解油と前記の各種テルペンとの共重合体やその水添物である共重合系石油樹脂などもあげられる。ここでナフサ分解油の C_5 留分としては、イソプレン、シクロペンタジエン、1,3-ペンタジエン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-2-ブテンなどのメチルブテン類、1-ペンテン、2-ペンテンなどのペンテン類、ジシクロペンタジエンなどが好ましく、 C_6

～C₁₁留分としてはインデン、スチレン、o-、m-、p-ビニルトルエン、 α -、 β -メチルスチレンなどのメチルスチレン類、メチルインデン、エチルインデン、ビニルキシレン、プロペニルベンゼンなどが好ましく、その他オレフィン系留分としてはブテン、ヘキセン、ヘプテン、オクテン、ブタジエン、オクタジエンなどが好ましい。

【0051】

フェノール系樹脂としては、アルキルフェノール樹脂、アルキルフェノールとアセチレンとの縮合によるアルキルフェノール-アセチレン樹脂及びこれらの変性物があげられる。ここで、これらフェノール系樹脂としては、フェノールを酸触媒でメチロール化したノボラック型樹脂、アルカリ触媒でメチロール化したレゾール型樹脂のいずれであってもよい。

【0052】

キシレン系樹脂としては、m-キシレンとホルムアルデヒドから成るキシレン-ホルムアルデヒド樹脂、これに第3成分を添加、反応させた変性樹脂などがあげられる。

【0053】

スチレン系樹脂としては、スチレンの低分子量品、 α -メチルスチレンとビニルトルエンとの共重合樹脂、スチレンとアクリロニトリルとインデンとの共重合樹脂などがあげられる。

【0054】

イソプレン系樹脂としては、イソプレンの二量化物であるC₁₀脂環式化合物とC₁₀鎖状化合物を共重合して得られる樹脂などがあげられる。これらの樹脂成分は単独で、あるいは2種以上を混合して用いられる。なお、樹脂成分としては、該当する市販品を使用することができる。

【0055】

本発明の粘着剤層で使用されるオレフィン系共重合体及び、熱可塑性樹脂組成物の付加成分として、老化防止剤、酸化防止剤、オゾン劣化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤等の各種安定剤を適宜配合することができる。また、帯電防止剤、スリップ剤、内部剥離剤、着色剤、分散剤、アンチブロッキング剤、滑剤、防曇

剤などの添加剤を適宜配合することができる。

【 0 0 5 6 】

本発明の粘着剤層で使用されるオレフィン系共重合体及び、熱可塑性樹脂組成物は、付加成分として、ガラス繊維、炭素繊維、金属繊維、ガラスビーズ、アスベスト、マイカ、炭酸カルシウム、チタン酸カリウムウイスカー、タルク、アラミド繊維、硫酸バリウム、ガラスフレーク、フッ素樹脂等の充填剤、ナフテン油、パラフィン系鉱物油等の鉱物油系軟化剤等を適宜配合することができる。

【 0 0 5 7 】

本発明の粘着剤層で使用されるオレフィン系共重合体及び、熱可塑性樹脂組成物は、付加成分として、難燃剤を適宜配合することができる。難燃剤の具体例としては、アンチモン系難燃剤、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、ほう酸亜鉛、ゲアニジン系難燃剤、ジルコニウム系難燃剤等の無機化合物、ポリりん酸アンモニウム、エチレンビストリス（2-シアノエチル）ホスフォニウムクロリド、トリス（トリブロモフェニル）ホスフェート、トリス（トリブロモフェニル）ホスフェート、トリス（3-ヒドロキシプロピル）ホスフィンオキシド等のりん酸エステル及びりん化合物、塩素化パラフィン、塩素化ポリオレフィン、パークロロシクロペンタデカン等の塩素系難燃剤、ヘキサブロモベンゼン、エチレンビスジブロモノルボルナンジカルボキシイミド、エチレンビステトラブロモフタルイミド、テトラブロモビスフェノールA誘導体、テトラブロモビスフェノールS、テトラブロモジペンタエリスリトール等の臭素系難燃剤及びそれらの混合物を例示することができる。

【 0 0 5 8 】

本発明の粘着剤層で使用されるオレフィン系共重合体及び、熱可塑性樹脂組成物は、付加成分として発泡剤を配合することにより、発泡体として使用することも可能である。かかる発泡に好適に使用し得る発泡剤の具体例としては、重炭酸ナトリウム、重炭酸アンモニウム、炭酸アンモニウム等の幹発泡剤、N，N'-ジニトロソペンタメチレンテトラミン等のニトロソ化合物、アゾカルボナミド、アゾイソブチロニトリル等のアゾ化合物、ベンゼンスルフォニルヒドラジン、p，p'-オキシビス（ベンゼンスルフォニルヒドラジド）、トルエンスルフォニ

ルヒドラジド、トルエンスルフォニルヒドラジド誘導体等のスルフォニルヒドラジド等が例示できる。また発泡加工には適宜発泡助材を用いることができる。発泡助材の具体例としては、サリチル酸、尿素及びその化合物等を例示することができる。

【 0 0 5 9 】

本発明において、高周波加工が要求される場合には、任意の極性ポリマーを添加することができる。かかる極性ポリマーの具体例としては、エチレンとアクリル酸、メタクリル酸、エタクリル酸、クロトン酸等のモノカルボン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸等のジカルボン酸やそのモノエステル、メチルメタクリレート、メチルアクリレート、エチルアクリレート等のアクリル酸又はメタクリル酸エステル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等の飽和カルボン酸のビニルエステル及びそのアイオノマーから選ばれた1つ又は、2つ以上のコモノマーとの共重合体又は、多元共重合体が例示できる。

【 0 0 6 0 】

本発明の粘着剤層は、粘着付与剤は必須の構成要素ではないが、タック性の向上その他の目的で添加してもよい。粘着付与剤としては、たとえば、ロジン、ダンマル等の天然ロジン樹脂、変性ロジン及びその誘動体、テルペン系樹脂及びその変性体、脂肪族系炭化水素樹脂、芳香族炭化水素系樹脂、アルキルフェノール樹脂、クロマンインデン樹脂のいわゆる粘着付与剤があげられる。これらのうち、テルペンフェノール、 α -ポリテルペン等のテルペン類が好ましい化合物である。具体的には、YSレジンTO-105、クリアロン（以上、ヤスハラケミカル社製）、アルコン、エステルガム、ペンセル（以上、荒川化学社製）等が例示される。

【 0 0 6 1 】

本発明の粘着フィルムまたはシートは、基材と粘着剤層からなる。基材としては、熱可塑性樹脂が用いられ、具体的には、結晶性ポリプロピレン、プロピレンの単独重合あるいはプロピレンと少量の α -オレフィンとのランダム又はブロック共重合体のポリプロピレン系樹脂、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレンのポリエチレン系樹脂、ポリ-

4-メチルペンテン-1エチレン- α -オレフィン共重合体、プロピレン- α -オレフィン共重合体、エチレン-エチルアクリレート共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-メチルメタクリレート共重合体、エチレン-n-ブチルアクリレート共重合体、等があげられる。又、上記のものの任意の組合せによる混合物も使用できる。これらの中ではより効果的に粘着性、剥離性に優れた粘着フィルムまたはシートを与える観点から、粘着剤層に用いるオレフィン系共重合体との相性のよいポリエチレン系樹脂、又はポリプロピレン系樹脂が好ましく、又粘着剤層と基材とが層間で剥離することなく粘着性を有するには、粘着剤層と基材とで使用する熱可塑性系樹脂は同種のものが好ましく、リサイクル性にも優れる。更に、粘着剤層にもちいるオレフィン系共重合体と熱可塑性樹脂とのブレンド系で熱可塑性樹脂の含有量を多くすることによって基材として使用することも可能である。

【0062】

上記の基材は、単層のフィルムまたはシートであってもよいが、2層以上の複合フィルムまたはシートであってもよい。また、基材は各種表面処理、例えば、コロナ放電処理、プラズマ処理、フレーム処理、電子線照射処理、紫外線照射処理等の周知の表面処理技術を用いることができる。また、基材は無色透明であってもよいが、上記原材料を着色し、または印刷を施すなどして、種々の用途に供することができる。

【0063】

本発明の粘着フィルムまたはシートは、基材層と粘着剤層をインフレーションフィルム製造装置やTダイフィルム製造装置などを用いて共押出法、押出コーティング法（押出ラミネート法ともいう。）などの技術を採用して積層フィルムまたはシートとして調製することができる。

【0064】

本発明の効果を損なわない範囲において、製膜後に少なくとも一軸方向に延伸してもよい。延伸は一軸でも二軸でも可能である。一軸延伸の場合は、例えば通常用いられるロール延伸法が好ましい。また、二軸延伸の場合は、例えば一軸に延伸した後に、二軸延伸を行う逐次延伸方式でもよく、チューブラ延伸のような

同時二軸延伸する方法でも可能である。

【 0 0 6 5 】

得られるフィルムまたはシートの厚さは特に限定されないが、好ましくは 0. 0 0 1 ~ 5 mm、さらに好ましくは 0. 0 0 5 ~ 2 mm 程度が好ましい。

【 0 0 6 6 】

更に、粘着フィルムまたはシートを、特に巻き物として使用する場合に、引き出し性すなわち自己剥離性という観点からは、剥離紙を挟んだり、剥離剤層などを設け、自背面との親和性を更に低下せしめることができる。例えば、剥離剤としては、シリコーン系として熱硬化型シリコーン系、光硬化型シリコーン系、他ポリマーとの共重合体あるいはブレンド系があり、非シリコーン系としては、長鎖アルキルポリマー、ポリオレフィン、フッ素化合物等を主成分とするものがある。また、離型剤その他の添加剤を配合し、表面の滑り性を改善する等、必要に応じ各種の機能性添加剤を使用することは、本発明の効果を損ねない範囲内において可能である。

【 0 0 6 7 】

本発明により得られた粘着フィルムまたはシートは、エレクトロニクス分野では半導体ウエハー用のバックグラインドテープ、ダイシングテープ、電子部品の搬送、プリント基板用の保護テープ、自動車関連では、窓ガラスや焼き付け塗装、自動車をユーザーにわたるまで保護するガードフィルム、表示、装飾の目的に使われるマーキングフィルム、緩衝、保護、断熱、防音目的のスポンジテープ、医療・衛生材料分野では、絆創膏、経皮吸収貼付薬、住宅・建設分野では、電気絶縁または識別用、ダクト工事用、窓ガラス保護フィルム、養生テープ、包装・梱包・事務・家庭用として、固定または結束用、補修用の粘着テープや保護用フィルムとして好適に用いられる。特に、合成樹脂板、建築資材のステンレスやアルミ板、化粧合板、鋼板、ガラス、又は家電製品、精密機械、自動車ボディー製造時の表面保護および、製造から加工工程に入るまでの積み重ね、保管、輸送時の傷の防止、曲げ加工、プレス加工の二次加工における傷を防止するため粘着フィルムまたはシート等に好適に用いられる。

【 0 0 6 8 】

【実施例】

以下の実施例により本発明を更に具体的に説明するが、これらは例示のためのものであり、本発明を限定するものではない。

〔1〕 オレフィン系共重合体の合成

実施例 1

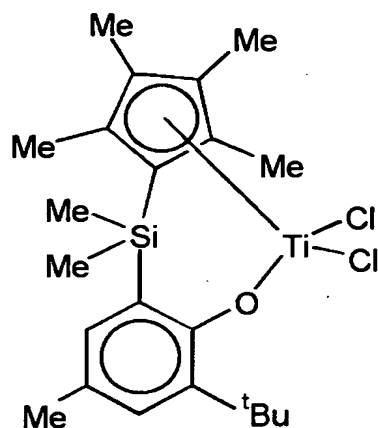
拌羽根を備えた 100 L のステンレススチール製重合器を用いて連続的に、プロピレン、1-ブテンの共重合を行った。すなわち、重合器下部から重合溶媒としてヘキサンを 83 L/時間、プロピレン 12 Kg/時間、1-ブテン 1.3 Kg/時間の速度で連続的に供給する。一方、重合器上部から重合器中の重合液が 100 L となるように連続的に重合液を抜き出す。触媒としてジメチルシリル（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、トリフェニルメチルテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリイソブチルアルミニウム（以後 TIBA と略記）をそれぞれ 0.005 g/時間、0.260 g/時間、1.654 g/時間の速度で重合器下部から重合器中に連続的に供給した。また、分子量調節を水素により行った。共重合反応は、重合器外部に取り付けられたジャケットに冷却水を循環させることで 34℃ で行った。重合器から抜き出した重合液に少量のエタノールを添加して重合反応を停止させ、脱モノマー、水洗浄後、大量の水中でスチームにより溶媒を除去して共重合体を取り出し、80℃ で昼夜減圧乾燥した。以上の操作により、プロピレン-1-ブテン共重合（重合体 A）が 2.9 Kg/時間の速度で行われた。

【0069】

実施例 2

拌羽根を備えた 100 L のステンレススチール製重合器を用いて連続的にエチレン、プロピレン、1-ブテンの共重合を行った。すなわち、重合器下部から重合溶媒としてヘキサンを 83 L/時間、エチレン 6.1 Kg/時間、プロピレン 1.9 Kg/時間、1-ブテン 17.1 Kg/時間の速度で連続的に供給する。一方、重合器上部から重合器中の重合液が 100 L となるように連続的に重合液を抜き出す。触媒としてジメチルシリル（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3

-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、トリフェニルメチルテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、TIBAをそれぞれ0.005 g/時間、0.297 g/時間、3.307 g/時間の速度で重合器下部から重合器中に連続的に供給した。また、分子量調節を水素により行った。共重合反応は、重合器外部に取り付けられたジャケットに冷却水を循環させることで53℃で行った。重合器から抜き出した重合液に少量のエタノールを添加して重合反応を停止させ、脱モノマー、水洗浄後、大量の水中でスチームにより溶媒を除去して共重合体を取り出し、80℃で昼夜減圧乾燥した。以上の操作により、エチレン-プロピレン-1-ブテン共重合(重合体B)が3.7 Kg/時間の速度で行われた。



ジメチルシリル(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド

【0070】

実施例3

攪拌機を備えた100Lのステンレススチール製重合器を用いて連続的にエチレンとプロピレンの共重合を行った。すなわち、重合器下部から重合溶媒として、ヘキサンを83 L/時間、エチレン3.5 Kg/時間、プロピレン17.3 Kg/時間の速度で連続的に供給する。触媒としてVO(OC₂H₅)₂Cl、エチルアルミニウムセスキクロライド(EASC)をそれぞれ2.22 g/時間、7.79 g/時間の速度で重合器下部から重合器中に連続的に供給した。また、分子量調節を水素により行った。共重合反応は、重合器外部に取り付けら

れたジャケットに冷却水を循環させることで38℃で行った。重合器から抜き出した重合液に少量のエタノールを添加して重合反応を停止させ、脱モノマー、水洗浄後、大量の水中でスチームにより溶媒を除去して共重合体を取り出し、80℃で昼夜減圧乾燥した。以上の操作より、エチレン-プロピレン共重合体（重合体C）が4.1Kg/時間の速度で行われた。結果を表1に示した。

【0071】

〔2〕オレフィン系共重合体の分析

（1）IR測定

オレフィン系共重合体をIRで分析したところ、 720 cm^{-1} にエチレンのメチレン横ゆれ振動、 1154 cm^{-1} にプロピレンのメチル分岐由来のメチル基横ゆれ振動、 770 cm^{-1} に1-ブテンのエチル分岐由来のメチル基横ゆれ振動が観察され、各モノマー成分が共重合していることが確認された。

（2）極限粘度 $[\eta]$

135℃テトラリン中でウベローデ粘度計を用いて行った。サンプルは300mgを100mlテトラリンに溶解し、3mg/mlの溶液を調整した。更に当該溶液を1/2、1/3、1/5に希釈し、それぞれを135℃（ $\pm 0.1^\circ\text{C}$ ）の恒温油槽中で測定した。それぞれの濃度で3回繰り返し測定し、得られた値を平均して用いた。

（3）分子量分布測定

分子量分布はゲルパーミエーションクロマトグラフ（GPC）法（Waters社製、150C/GPC装置）により行った。溶出温度は140℃、使用カラムは昭和電工社製Sodex Packed Column A-80M、分子量標準物質はポリスチレン（東ソー社製、分子量68-8,400,000）を用いた。得られたポリスチレン換算重量平均分子量（ M_w ）、数平均分子量（ M_n ）、更にこの比（ M_w/M_n ）を分子量分布とする。測定サンプルは約5mgの重合体を5mlのo-ジクロロベンゼンに溶解、約1mg/mlの濃度とする。得られたサンプル溶液の400 μl をインジェクションした。溶出溶媒流速は1.0ml/minとし、屈折率検出器にて検出した。

（4）示差走査熱量計（DSC）測定

示差走査熱量計（セイコー電子工業社製 D S C 2 2 0 C）を用いて、昇温及び降温過程のいずれも 1 0 ° C / 分の速度で測定を行った。

【 0 0 7 2 】

[3] 表面保護用粘着シート評価（表 2）

実施例 4

粘着剤層としてオレフィン系共重合体（重合体 A）、基材としてエクセレン E P X K S 3 7 G 1（住友化学工業社製、2 3 0 ° C M I = 2 . 5 g / 1 0 分）とをそれぞれ 1 0 0 μ m シート成形したのち、張り合わせ 2 0 0 ° C オープン上で加熱融着を行い粘着シートを得た。

【 0 0 7 3 】

実施例 5

オレフィン系共重合体（重合体 A）7 0 重量部とノーブレン S 1 3 1（住友化学工業社製、2 3 0 ° C M I = 1 . 5 g / 1 0 分）を 3 0 重量部となるようにブラベンダー社製プラスチコーダー P L V 1 5 1 型を用いて、温度 2 0 0 ° C、スクリュー回転数 1 0 r p m で 2 分間予備混練を行った後、8 0 r p m で 1 0 分間混練を行い粘着剤を得た。この粘着剤と、基材としてエクセレン E P X K S 3 7 G 1 とをそれぞれ 1 0 0 μ m シート成形したのち、張り合わせ 2 0 0 ° C オープン上で加熱融着を行い粘着シートを得た。

【 0 0 7 4 】

実施例 6

粘着剤層としてオレフィン系共重合体（重合体 C）、基材としてスミカセン F 2 0 0（住友化学工業社製、1 9 0 ° C M I = 2 g / 1 0 分）とをそれぞれ 1 0 0 μ m フィルム成形したのち、張り合わせ 1 8 0 ° C オープン上で加熱融着を行い粘着シートを得た。

【 0 0 7 5 】

実施例 7

オレフィン系共重合体（重合体 B）7 0 重量部とエクセレン E P X K S 3 7 G 1 3 0 重量部となるようにブラベンダー社製プラスチコーダー P L V 1 5 1 型を用いて、温度 2 0 0 ° C、スクリュー回転数 1 0 r p m で 2 分間予備混練を行

った後、80rpmで10分間混練を行い粘着剤を得た。該粘着剤と基材としてスミカセンCE2575（住友化学社製、190℃ MFR=2g/10分）とを、ブラコー（株）社製インフレフィルム成形機を用いて積層フィルム加工した。具体的には、該粘着剤を $\phi 50\text{mm}$ 、 $L/D=28$ の押出機から190℃にて押出し、一方、スミカセンCE2575を $\phi 50\text{mm}$ 、 $L/D=28$ の押出機から190℃にて押出し、この両者をダイ径 $\phi 150\text{mm}$ 、ダイリップ1.2mm、ダイス温度190℃の多層インフレダイに供給し、基材の片面に粘着剤が積層されるようにして、ブロー比1.8、引取速度10m/分でインフレーション成形することにより、全厚み50 μm 、厚み比1/4の粘着フィルムを製造した。

【0076】

実施例8

オレフィン系共重合体（重合体B）60重量部とエクセレンEPX KS37 G1 40重量部となるようにブラベンダー社製プラスチコーダーPLV151型を用いて、温度200℃、スクリュー回転数10rpmで2分間予備混練を行った後、80rpmで10分間混練を行い粘着剤を得た。該粘着剤と基材としてスミカセンCE2575を用い、実施例7と同様に粘着フィルムを製造した。

【0077】

実施例9

オレフィン系共重合体（重合体B）50重量部とエクセレンEPX KS37 G1 50重量部となるようにブラベンダー社製プラスチコーダーPLV151型を用いて、温度200℃、スクリュー回転数10rpmで2分間予備混練を行った後、80rpmで10分間混練を行い粘着剤を得た。該粘着剤と基材としてスミカセンCE2575を用い、実施例7と同様に粘着フィルムを製造した。

【0078】

比較例1

粘着層としてアフィニティPF1140（ダウ社製、 $[\eta]=1.0\text{dl/g}$ 、 $M_w/M_n=2.3$ 、融点98℃、融解熱86J/g）、基材としてスミカセンF200とをそれぞれ100 μm シート成形したのち、張り合わせ180℃オープン上で加熱融着を行い粘着シートを得た。

【 0 0 7 9 】

比較例 2

粘着剤層としてエスプレン 2 0 1（住友化学社製、 $[\eta] = 1.7 \text{ dl/g}$ 、 $M_w/M_n = 3.6$ ）70重量部とスミカセン F 2 0 0 を 3 0 重量部となるようにブラベンダー社製プラスチックオーダー P L V 1 5 1 型を用いて、温度 1 8 0 °C、スクリー回転数 1 0 r p m で 2 分間予備混練を行った後、8 0 r p m で 1 0 分間混練を行い粘着剤を得た。この粘着剤と、基材としてスミカセン F 2 0 0 を用い実施例 7 と同様に粘着フィルムを製造した。

【 0 0 8 0 】

（性能試験）

1. 剥離強度

実施例 4 ～ 9 及び比較例 1 ～ 2 の粘着フィルムまたはシートをアクリル板に貼り付け、5 K g のゴム被覆ローラーで圧着後 2 3 °C で 3 0 分間放置し、剥離幅 2 5 m m 、ピール角度 1 8 0 ° 、剥離速度 3 0 0 m m / m i n 、2 3 °C でフィルムまたはシートを剥がした際に要する力を測定した。同様に - 2 0 °C で 3 0 分間放置し、- 2 0 °C で剥がした際に要する力も測定した。

2. 経時剥離力

前項と同様な方法でアクリル板に貼着し、熱風循環式オープン中で、4 0 °C × 7 5 時間放置し、各アクリル板の温度が 2 3 °C まで冷めた後、剥離幅 2 5 m m 、ピール角度 1 8 0 ° 、剥離速度 3 0 0 m m / m i n で粘着フィルムまたはシートを剥がした際に要する力を測定した。

3. 汚染性評価

前項の経時剥離試験の終わった後、剥離されたアクリル板の表面を目視で観察し、外観の汚染による曇りの有無を評価した。

実施例 4 ～ 9 及び比較例 1 ～ 2 の結果を表 2 に示す。

【0081】

【表1】

		実施例 1	実施例 2	実施例 3
		重合体 A	重合体 B	重合体 C
結晶融点	℃	なし	なし	なし
結晶融解熱量	mj/mg	なし	なし	なし
結晶化温度	℃	なし	なし	なし
結晶化熱量	mj/mg	なし	なし	なし
ガラス転移温度	℃	-9	-61	-57
極限粘度 $[\eta]$	dl/g	2.3	1.3	3.6
GPC Mw/Mn		2.1	2.0	2.0

* 1 (f) : トリイソブチルアルミニウム

* 2 (g) : トリフェニルメチルテトラキス (ペンタフルオロフェニル) ボレー
ト* 3 (h) : ジメチルシリル (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-tert-
ブチル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド

【0082】

【表 2】

	2 3℃ 剥離強度	- 2 0℃ 剥離強度	経時剥離力	汚染性
実施例 4	5 3 0	1 0 0 0	5 0 0	なし
実施例 5	3 0	3 0	5 0	なし
実施例 6	2 5	3 0	2 5	なし
実施例 7	2 5 0	1 8 0	2 3 0	なし
実施例 8	6 5	1 5 0	1 2 0	なし
実施例 9	4 0	7 0		
比較例 1	2	0	—	—
比較例 2	5 0	8 0	1 8 0	あり

[g / 25 m m]

【 0 0 8 3 】

【発明の効果】

以上説明したとおり、本発明によって、使用温度範囲に関わらず低温環境下や高温環境下でも極端な経時変化することなく好適な粘着性を維持し、使用後の被着体表面を汚染することなく剥離性に優れた粘着フィルムまたはシートを提供することができ、更に、粘着剤層に本発明のある特定の熱可塑性樹脂組成物を用いることによって、特定の重合体と結晶性ポリオレフィン系樹脂のブレンド比率により、粘着力を制御した粘着フィルムまたはシートを提供することができた。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 使用温度範囲に関わらず低温環境下や高温環境下でも極端な経時変化することなく好適な粘着性を維持し、使用後の被着体表面を汚染することなく剥離性に優れた粘着フィルムまたはシートを提供することができ、更に、粘着剤層に本発明のある特定の熱可塑性樹脂組成物を用いることによって、特定の重合体と結晶性ポリオレフィン系樹脂のブレンド比率により、粘着力を制御した粘着フィルムまたはシートを提供する。

【解決手段】 熱可塑性樹脂からなる基材の少なくとも一方の最外層に粘着剤層を形成してなる粘着フィルムまたは、シートにおいて、前記粘着剤層が炭素数 2 ～ 20 のうち、2 種類以上の α -オレフィンを必須とする (A) オレフィン系共重合体を含むし、該オレフィン系共重合体が (1) と (2) を満たすことを特徴とする粘着フィルムまたは、シート。

(1) 示差走査熱量計 (DSC) を用い、JIS K 7122 に準拠して測定した場合に、結晶の融解に基づく 1 J/g 以上のピーク、及び結晶化に基づく 1 J/g 以上のピークのいずれも有しない

(2) ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー (GPC) で測定される分子量分布 M_w/M_n が 3 以下

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002093]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

氏 名 住友化学工業株式会社